### IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

**Applicant:** 

Thomas Dietz, et al.

**Docket:** 14186

Serial No.:

Herewith

Dated:

February 6, 2001

Filed:

Herewith

For:

COSMETIC AND PHARMACEUTICAL

**OIL-IN-WATER EMULSIONS** 

Assistant Commissioner for Patents Washington, DC 20231

## **CLAIM OF PRIORITY**

Sir:

Applicants in the above-identified application hereby claim the right of priority in connection with Title 35 U.S.C. § 119 and in support thereof, herewith submits a certified copy of German Patent Application 100 07 649.1 filed on February 19, 2000.

Respectfully submitted,

William C. Roch

Registration No. 24,972

Scully, Scott, Murphy & Presser 400 Garden City Plaza Garden City, NY 11530 (516) 742-4343

WCR:ms/ahs

## CERTIFICATE OF MAILING BY EXPRESS MAIL

Express Mail Mailing Label Number: EL739620755US

Date of Deposit: February 6, 2001

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the United States Postal Service Express Mail Post Office to Addressee service under 37 C.F.R. §1.10 on the date indicated above and is addressed to the Assistant Commissioner of Patents and Trademarks,

Washington, D.C. 20231.

Dated: February 6, 2001

Michelle Mustafa

F:work\1030\14186\misc\14186.claimprior







#6



# Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen:

100 07 649.1

Anmeldetag:

19. Februar 2000

Anmelder/Inhaber:

Goldschmidt AG, Essen/DE

Bezeichnung:

Kosmetische und pharmazeutische Öl-in-Wasser-

Emulsionen

IPC:

A 61 K 7/00

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 21. November 2000 Deutsches Patent- und Markenamt Der Präsident

Im Auftrag



A 1972

## Goldschmidt AG, Essen

5

10

15

20

25

30

Kosmetische und pharmazeutische Öl-in-Wasser-Emulsionen

Die Erfindung betrifft die Verwendung von polyethermodifizierten Polysiloxanen definierter Struktur zur Herstellung kosmetischer und pharmazeutischer Öl-in-Wasser-Emulsionen sowie Öl-in-Wasser-Emulsionen, die diese enthalten.

Der überwiegende Teil kosmetischer und pharmazeutischer Emulsionen ist vom Typ Öl-in-Wasser, d. h. die Ölphase ("disperse Phase") ist in Form kleiner Tröpfchen in der Wasserphase ("kohärente Phase") feinst verteilt. Viskosität von Emulsionen, die nur aus Wasser, Öl und Emulgator bestehen und deren Gehalt an disperser Phase unter 60 Gew.-% liegt, ist gleich der Viskosität der kohärenten Phase, im Fall von Öl-in-Wasser-Emulsionen also gleich der von Wasser. Kosmetische Emulsionen enthalten aus Gründen des Hautgefühls im Durchschnitt nicht mehr als 30 % Ölphase, d. h. auch sie wären *per se* wasserdünn. Da aber vom Verbraucher in der Regel lotionsartige (dickflüssige) bis cremeartige (halbfeste) Konsistenz gewünscht wird, und auch die Stabilität von Emulsionen mit der Viskosität der kohärenten Phase zunimmt, ist das "Verdicken" von Öl-in-Wasser-Emulsionen unerläßlich. Dazu gibt es zwei grundsätzlich unterschiedliche Methoden, die miteinander kombiniert werden können. Die eine Methode beruht darauf, daß bestimmte Öl-in-Wasser-Emulgatoren dazu in der Lage sind, zusammen mit sogenannten "hydrophilen Wachsen" flüssigkristalline (lamellare) Strukturen in der

kohärenten Wasserphase auszubilden, die sich zu einem dreidimensionalen Netzwerk zusammenfügen, das zum einen zu einer starken Viskositätserhöhung der Emulsion führt und zum anderen die Öltröpfchen voneinander getrennt hält und so die Stabiltität der Emulsion verbessert. Beispiele für "hydrophile Wachse" sind Stearylalkohol, Stearinsäure und Glycerylstearat. Die andere Methode beruht Fähigkeit von sogenannten "Hydrokolloiden", ein Vielfaches ihres Eigengewichts an Wasser aufzunehmen und zu binden und so zu einer Verdickung von Wasser zu führen. Beispiele für solche wasserquellbaren Organopolymere sind vernetzte ("Carbomere") Polyacrylate und Polysaccharide, beispielsweise Xanthan-Gum. Nachteil dieser beiden Verdickungsmethoden ist jedoch, daß die dabei verwendeten Substanzen sich während oder nach der Anwendung der Emulsionen negativ auf das Hautgefühl auswirken können. So lassen sich beispielsweise in Anwesenheit größerer Mengen hydrophiler Wachse die Emulsionen nur schwer verteilen und es bleibt oft ein stumpfes, wachsartiges Hautgefühl zurück. Auf der anderen Seite zeigen auch die wasserquellbaren Organopolymere Nachteile in den Applikationseigenschaften. beobachtet man beispielsweise bei Carbomeren sogenannten "Quick-Breaking-Effekt". Darunter versteht man das Phänomen, daß bei Kontakt der Emulsion mit Elektrolyten der Haut die Emulsion sofort bricht, was sich durch ein "wäßriges Wegrutschen" beim Einreiben bemerkbar macht und oft als unangenehm empfunden wird.

Öl-in-Wasser-Emulsionen Zur Herstellung von werden üblicherweise Emulgatoren eingesetzt, deren HLB-Wert zwischen und 18 liegt. Der HLB-Wert ist eine dimensionslose Größe zur Charakterisierung von Tensiden und beschreibt das Verhältnis von hydrophilem zu lipophilem Anteil im Molekül (HLB = Hydrophile-Lipophile Balance). So

10

15

20

25

wurde auf Basis zahlreicher Experimente von Griffin (J. Cosmet. Chem. 1949, 1, 311) gefunden. beispielsweise Tenside mit einem HLB-Wert von 3 bis 6 als Wasser-in-Öl-Emulgatoren, mit einem HLB-Wert von 6 bis 8 als Netzmittel und Tenside mit einem HLB-Wert größer als 8 als Öl-in-Wasser-Emulgatoren geeignet sind. Im einfachsten Fall errechnet sich der HLB-Wert aus dem prozentualen Anteil des hydrophilen Teils eines beispielsweise des Polyethylenglycolteils, indem man diesen durch 5 dividiert. So beträgt beispielsweise der hydrophile Anteil im Anlagerungsprodukt von 20 Mol Ethylenoxid (MG = 880 g/mol) an Stearinsäure (284 g/mol) 76 %, entsprechend einem HLB-Wert von 15 (= 76/5). Dieses HLB-Konzept ist ursprünglich auf nichtionogene, keine anderen Atome als Kohlenstoff. Wasserstoff und Sauerstoff enthaltende Substanzen beschränkt. Ferner gilt diese HLB-Wert-Definition nicht exakt für Substanzen, deren hydrophiler neben Ethylenglycolauch Propylenglycoleinheiten enthält.

20

30

10

15

Nachteil von Emulgatoren mit einem HLB-Wert deutlich größer als 8 ist, daß sie weniger mild sind als Emulgatoren mit einem niedrigeren HLB-Wert. Ferner sind sie aufgrund ihrer höheren Hydrophilie leichter re-emulgierbar, das heißt sie lassen sich leichter wieder von der Haut mit Wasser abwaschen, was beispielsweise bei Sonnenschutzformulierungen unerwünscht ist, die wasserfest sein sollen. Umqekehrt bilden Emulgatoren mit einem HLB-Wert um 8 und darunter einen hydrophoben Film auf der Haut, der diese vor übermäßigem Wasserverlust schützt und so einen pflegenden Effekt besitzt. Dies ist wohl der Hauptgrund dafür, daß Wasser-in-Öl-Emulsionen, die Emulgatoren mit einem HLB-Wert 8 erfordern. einen stärkeren Pflegeeffekt besitzen als Öl-in-Wasser-Emulsionen, die eher hydrophile

Emulgatoren enthalten. Öl-in-Wasser-Emulsionen werden jedoch in der Regel vom Verbraucher bevorzugt, da sie sich aufgrund der wäßrigen äußeren Phase leichter verteilen lassen.

5

Öl-in-Wasser-Emulsionen, die Polyethersiloxane enthalten, sind aus dem Stand der Technik bekannt, wie im folgenden dargelegt wird.

154 837 A2 beschreibt niedrigviskose Öl-in-Wasser-

20

10

Emulsionen mit einer Kombination aus einem kammartigen, endverschlossenen Polyethersiloxan, einem Tensid mit einem HLB-Wert nicht kleiner als 10 und einem Fettalkohol als Emulgatoren, die einen niedrigen Ölphasengehalt besitzen und deren Ölphase überwiegend aus Siliconöl besteht und

zusätzlich die Wasserphase Ethanol enthält.

EP 0 279 319 A beschreibt pigmenthaltige Öl-in-Wasser-Emulsionen mit einem Polyethersiloxan als Emulgator, dessen Polyetherrest maximal 50 Mol-% Polyoxypropylen-Einheiten enthält, und deren Ölphase überwiegend aus unmodifzierten oder alkylmodifizierten Siliconölen besteht.

EP 0 516 547 A beschreibt Öl-in-Wasser-Emulsionen mit einem kammartigen Polyethersiloxan mit einem HLB-Wert von 9 bis 12 als Emulgator, dessen Polyether ausschließlich aus Polyethylenoxid mit endständiger OH-Gruppe besteht. Die Ölphase besteht aus einem kettenförmigen oder einem cyclischen Siloxan.

30

DE 4 41 799 C1 beschreibt kosmetische Mittel, die in zwei separaten, optisch voneinander getrennten Phasen vorliegen, durch Schütteln unmittelbar vor der Anwendung zu einer homogenen Emulsion vereinigt werden können und nach

erfolgter Anwendung sich rasch wieder in separate Phasen trennen. Als Emulgator wird ein kammartiges Polyethersiloxan verwendet.

5 Aus 627 259 **A2** ist bekannt, daß auch Siliconpolyethern mit einem HLB-Wert zwischen 4 und 7 Silicon-in-Wasser-Emulsionen erhalten werden können. Diese werden durch Einrühren einer Ölphase, die aus Siliconöl und einem ersten Siliconpolyether besteht, in eine Wasserphase, die einen zweiten Siliconpolyether enthält, hergestellt. 10 Beide Siliconpolyether sind kammartig aufgebaut.

Der Stand der Technik läßt sich so zusammenfassen, daß Ölin-Wasser-Emulsionen mit Siliconpolyethern als Emulgatoren
bekannt sind, bei denen die Ölphase zum überwiegenden Teil
aus Siliconölen besteht und der Siliconpolyether kammartig
aufgebaut ist.

Gegenstand der Erfindung ist in einer ersten

20 Ausführungsform eine kosmetische oder pharmazeutische Ölin-Wasser-Emulsion, die ein oder mehrere Polyethersiloxane
der allgemeinen Formel (I)

$$R(CH_3)_2SiO-[(CH_3)_2SiO]_n-Si(CH_3)_2R$$
 (I)

25

wobei

n = 50 bis 250

 $R = -(CH_2)_m - O - (C_2H_4O)_x - (C_3H_6O)_x R^1$ 

m = 2 bis 4

30 x = 3 bis 100

y = 0 bis 50

 $R^1 = H$ ,  $CH_3$ , oder  $CH_2CH_3$ 

ist,

mit einem Gewichtsanteil der Polyetherreste R von bis zu 45 Gew.-% an der Gesamtmolekularmasse, berechnet nach Formel (II)

5

"Gewichtsanteil (in %) der Polyetherreste R an der Gesamtmolekularmasse" =  $(MG_{Polyetherreste}/MG_{Gesamt}) \bullet 100$  (II)

mit

10

 $MG_{Gesamt} = MG_{Siliconrest} + MG_{Polyetherreste}$ 

 $MG_{Siliconrest} = n \cdot 74,1 + 132,2$ 

 $MG_{Polyetherreste} = 2 \cdot (m \cdot 14 + 16 + x \cdot 44 + y \cdot 58 + z)$  mit z = 1, 15 oder 29,

15

25

enthält.

Eine weitere Ausführungsform der Erfindung umfaßt kosmetische oder pharmazeutische Öl-in-Wasser-Emulsionen, 20 enthaltend

- (a) ein oder mehrere Polyethersiloxane der allgemeinen Formel (I)
- (b) flüssig-kristalline Strukturen ausbildende hydrophile Wachse und/oder wasserquellbare Organopolymere als Konsistenzgeber und Stabilisatoren
- (c) kosmetische Öle und Wachse und
- (d) übliche Hilfs- und Wirkstoffe.
- 30 Es wurde überraschend gefunden, daß mit eher <u>hydrophoben</u> polyethermodifizierten Polysiloxanen definierter Struktur als emulgieraktive Komponente homogene und stabile Öl-in-Wasser-Emulsionen erhalten werden können, insbesondere auch Öl-in-Wasser-Emulsionen, die wenig oder gar keine

Siliconverbindungen als Ölkomponenten enthalten. Ferner war überraschend, daß mit diesem speziellen Typ von Polyethersiloxanen die in kosmetischen Öl-in-Wasser-Emulsionen üblichen konsistenzgebenden Strukturen, seien es die flüssig-kristallinen Strukturen der hydrophilen Wachse oder die aus wasserquellbaren Organopolymeren gebildeten Gelstrukturen, weniger gestört werden als mit üblichen hydrophilen Polyethersiloxanen. Diese Störung macht sich beispielsweise durch ein griessiges Aussehen unmittelbar 10 nach Herstellung einer Emulsion bemerkbar, deren cremeartige Konsistenz mit Hilfe von hydrophilen Wachsen wurde erzeugt oder, im Fall von wasserquellbaren durch Organopolymeren, eine niedrigere Viskosität Emulsion. Außerdem war nicht vorhersehbar, daß die erfindungsgemäß eingesetzten Polyethersiloxane die durch 15 die üblichen Konsistenzgeber verursachten Nachteile in den Applikationseigenschaften, wie beispielsweise das stumpfigwachsige Hautgefühl, der "Quick-Breaking-Effekt" oder das "Weißeln" (= Schäumen beim Einreiben), minimieren oder sogar gänzlich aufheben und selbst direkt das Hautgefühl 20 positiv beeinflussen. Die Haut fühlt sich, insbesondere nach dem Einreiben der Emulsion ("After Feel"), samtigseidig und außerordentlich glatt an, was zusätzlich auch noch lange anhält. Dieses einzigartige Hautgefühl wird mit marktüblichen organischen Emulgatoren nicht oder anderen als den erfindungsgemäß verwendeten α,ω-Polyethersiloxanen, auch nicht in Kombination mit öllöslichen Siliconverbindungen wie beispielsweise cyclischen oder kettenförmigen Polydimethylsiloxanen, erzielt. Eine besondere Ausführungsform dieser Erfindung daher Öl-in-Wasser-Emulsionen, die frei siliconartigen Ölkomponenten sind.

Aufgrund des eher hydrophoben Charakters dieser Polyethersiloxane ist ferner zu erwarten, daß sie besonders hautmild sind, einen hydrophoben Film auf der Haut bilden, der die Haut vor dem Austrocknen schützt und selbst nur schwer mit Wasser wieder entfernbar ist, was zum Beispiel für wasserfeste Sonnenschutzpräparate nützlich ist.

Aus früheren Arbeiten des Standes der Technik ist bekannt, daß Polyethersiloxane gleich welcher Art allein ohne Co-Emulgator nicht in der Lage sind, im Wechselspiel mit hydrophilen Wachsen wie Stearylalkohol oder Glycerylstearat flüssig-kristalline Strukturen in · der kohärenten Wasserphase aufzubauen und damit die erforderliche lotionsoder cremartige Konsistenz sowie Stabilität zu liefern. Es war jedoch überraschend, daß dies bereits mit nur einem geringen Anteil eines Co-Emulgators möglich ist und daß und langszeitstabile Emulsionen nur mit verwendeten Polyethersiloxanen erfindungsgemäß erhalten können. In einem Vergleichsexperiment beispielsweise einem kammartigen, hydrophilen Polysiloxan war die Creme nach Herstellung und Abkühlen stark inhomogen und griessig.

Zur genauen Abgrenzung der erfindungsgemäß eingesetzten Polyethersiloxane zu den aus dem Stand der Technik bekannten, zur Herstellung von Öl-in-Wasser-Emulsionen verwendeten Polyethersiloxanen wird auf die Angabe eines HLB-Wertes zugunsten einer Angabe des Gewichtsanteils der Polyetherreste am Gesamtmolekulargewicht verzichtet, zumal eine klassische Berechnung des HLB-Werts nicht korrekt wäre, da diese Klasse von Emulgatoren Silicium-Atome und zusätzlich im . Polyetherrest auch Propylenglycoleinheiten zugelassen sind. Auch eine Charakterisierung mit Hilfe des sogenannten

10

15

20

25

"dreidimensionalen HLB-Konzepts" von A. J. O'Lenick et al. Toil., 111, 1996, 37 - 44) erscheint wenig sinnvoll. Denn dieses System sagt voraus, daß Siliconpolyethern keine stabilen Öl-in-Wasser- oder Wasserin-Öl-Emulsionen erhalten werden können, da Siliconpolyether keine Komponente enthalten, die in einer organischen Ölphase löslich sind. Genau dies wird mit der erfindungsgemäßen Verwendung der im folgenden beschriebenen Polyethersiloxane widerlegt. Beim "dreidimensionalen HLB-Konzept" wird zusätzlich zur wasser- und öllöslichen 10 Komponente eines Emulgators auch eine siliconlösliche Komponente berücksichtigt. Ein Emulgator wird so durch einen HLB-Wert für den wasserlöslichen Anteil (0 - 20) und einem HLB-Wert für den ölllöslichen Anteil (0 - 20) bereits eindeutig charakterisiert, wobei sich der HLB-Wert für den 15 siliconlöslichen Anteil aus der Differenz von 20 und der Summe der HLB-Werte für den wasser- und öllöslichen Anteil ergibt. In einem rechtwinkligen Dreieck, dessen Hypothenuse die klassische HLB-Skala von 0 bis 20 darstellt, sind die Bereiche mit den entsprechenden HLB-Werten des Emulgators eingegrenzt, in denen stabile Emulsionen eines bestimmten Typs erhalten werden. Mögliche Emulsionstypen sind Wasserin-Öl, Öl-in-Wasser, Wasser-in-Silicon, Silicon-in-Wasser, Öl-in-Silicon und Silicon-in-Öl. Aus dem HLB-Dreieck ist so beispielsweise ersichtlich, daß Siliconpolyether (der HLB-Wert für den öllöslichen Anteil ist in diesem Fall 0) mit einem HLB-Wert von 9 bis 18 für den wasserlöslichen Anteil Silicon-in-Wasser-Emulsionen ergeben, während mit HLB-Wert von 3 bis 6 Wasser-in-Silicon-Emulsionen. Es kann ferner daraus abgeleitet werden, daß mit Siliconpolyethern keine stabilen Öl-in-Wasser- oder Wasser-in-Öl-Emulsionen erhalten werden sollten. Dies scheint naheliegend, da Siliconpolyether keine Komponente enthalten, die in einer organischen Ölphase löslich sind. Dies erklärt auch, warum

20

25

bislang im Stand der Technik nur Emulsionen mit Siliconpolyethern beschrieben werden, die ausschließlich oder überwiegend Siliconöl als zweite Phase neben der Wasserphase enthalten.

5

10

15

Die erfindungsgemäß eingesetzten Polyethersiloxane zeichnen sich dadurch aus, daß sie im Gegensatz zu den im Stand der Technik benutzten Siliconpolyethern nicht sondern an den beiden Enden der linearen unverzweigten Siliconkette die Polyetherreste tragen und Gewichtsanteil der Polyetherreste an der Gesamtmolekularmasse kleiner oder gleich 45 % ist. Die erfindungsgemäßen Emulsionen können ferner zusätzlich einen oder mehrere Co-Emulgatoren, jedoch in geringerem Anteil als die erfindungsgemäß Polyethersiloxane, verwendeten sowie für kosmetische Emulsionen typische Konsistenzgeber und Stabilisatoren enthalten.

In einer weiteren Ausführungsform umfaßt die Erfindung 20 Emulsionen, die Polyethersiloxane der allgemeinen Formel (I) in Kombination mit weiteren Emulgatoren enthalten, wobei jedoch der Anteil der Polyethersiloxane der allgemeinen Formel (I) an der Summe der Emulgatoren mehr als 50 Gew.-%, vorzugsweise 65 bis 90 Gew.-% beträgt.

25

Als weitere Emulgatoren kommen beispielsweise nichtionogene Tenside aus mindestens einer der folgenden Gruppen in Frage:

30 Anlagerungsprodukte von 2 bis 30 Mol Ethylenoxid 0 bis 5 Mol Propylenoxid an Fettalkohole mit 8 bis 22 C-Atomen, an Fettsäuren mit 12 bis 22 C-Atomen und an Alkylphenole mit 8 bis 15 C-Atomen in der Alkylgruppe

- C12/18-Fettsäuremono- und -diester von Anlagerungsprodukten von 1 bis 30 Mol Ethylenoxid an Glycerin
- 5 Glycerinmono- und -diester und Sorbitanmono- und diester von gesättigten und ungesättigten Fettsäuren mit
  6 bis 22 Kohlenstoffatomen und deren
  Ethylenoxidanlagerungsprodukte
- 10 Alkylmono- und -oligoglycoside mit 8 bis 22 Kohlenstoffatomen im Alkylrest und deren ethoxylierte Analoga
- Anlagerungsprodukte von 15 bis 60 Mol Ethylenoxid an Ricinusöl und/oder gehärtetes Ricinusöl
  - Polyol- und insbesondere Polyglycerinester, wie beispielsweise Polyglycerinpolyricinoleat, Polyglycerin-12-hydroxystearat oder Polyglycerindimerat. Ebenfalls geeignet sind Gemische von Verbindungen aus mehreren dieser Substanzklassen
  - Anlagerungsprodukte von 2 bis 15 Mol Ethylenoxid an Ricinusöl und/oder gehärtetes Ricinusöl

Partialester auf Basis linearer, verzweigter, ungesättigter bzw. gesättigter C6/22-Fettsäuren, Ricinolsäure sowie 12-Hydroxystearinsäure und Glycerin, Polyglycerin, Pentaerythrit, Dipentaerythrit, Zuckeralkohole (beispielsweise Sorbit), Alkylglucoside (bei-30 spielsweise Methylglucosid, Butylglucosid, Laurylglucosid) sowie Polyglucoside (beispielsweise Cellulose)

20

- Mono-, Di- und Trialkylphosphate sowie Mono-, Diund/oder Tri-PEG-alkylphosphate und deren Salze
- Wollwachsalkohole

5

- Polysiloxan-Polyalkyl-Polyether-Copolymere beziehungsweise entsprechende Derivate
- Mischester aus Pentaerythrit, Fettsäuren, Citronensäure 10 Fettalkohol gemäß DE-PS 11 65 574 und/oder Mischester von Fettsäuren mit 6 bis 22 Kohlenstoffatomen, Methylglucose und Polyolen, vorzugsweise Glycerin oder Polyglycerin sowie
- 15 Polyalkylenglycole
  - Betaine
  - Esterquats

- Natrium-, Kalium- oder Ammoniumsalze von langkettigen Alkyl- und Alkylethersulfonsäuren.
- Die Anlagerungsprodukte von Ethylenoxid und/oder Propylenoxid an Fettalkohole, 25 Fettsäuren, Alkylphenole, Glycerinmono- und diester sowie Sorbitanmono- und -diester von Fettsäuren oder an Ricinusöl stellen bekannte, Handel erhältliche Produkte dar. Es handelt sich dabei um Homologengemische, deren mittlerer Alkoxylierungsgrad dem 30 Verhältnis Stoffmengen von der Ethylenoxid und/oder Propylenoxid und Substrat, denen mit die Anlagerungsreaktion durchgeführt wird, entspricht.

Weiterhin können als Emulgatoren zwitterionische Tenside verwendet werden. Als zwitterionische Tenside werden solche oberflächenaktiven Verbindungen bezeichnet, die im Molekül mindestens eine quartäre Ammoniumgruppe und mindestens eine Carboxylat- und eine Sulfonatgruppe tragen. geeignete zwitterionische Tenside sind die sogenannten Betaine wie N-Alkyl-N, N-dimethylammoniumglycinate, die beispielsweise das Cocosalkyldimethylammoniumglycinat, N-Acylaminopropyl-N, N-dimethylammoniumglycinate, beispielsweise das Cocosacylaminopropyldimethylammoniumglycinat, und 2-Alkyl-3-carboxylmethyl-3-hydroxyehtylimidazoline mit jeweils 8 bis 18 C-Atomen in der Alkyl- oder Acylgruppe sowie Cocosacylaminoethylhydroxyethylcarboxymethyldas Besonders bevorzugt ist das unter der CTFA-Bezeichnung Cocamidopropyl Betaine bekannte Fettsäureamid-Derivat. Ebenfalls geeignete Emulgatoren sind ampholytische Unter ampholytischen Tensiden werden oberflächenaktiven Verbindungen verstanden, die außer einer C8/18-Alkyl- oder -Acylgruppe im Molekül mindestens eine freie Aminogruppe und mindestens eine -COOH- oder -SO3H-Gruppe enthalten und zur Ausbildung innerer Salze befähigt sind. Beispiele für geeignete ampholytische Tenside sind N-Alkylglycine, N-Alkylpropionsäuren, N-Alkylaminobuttersäuren. N-Alkyliminodipropionsäuren, N-Hydroxyethyl-Nalkylamidopropylglycine, N-Alkyltaurine, N-Alkylsarcosine, 2-Alkylaminopropionsäuren und Alkylaminoessigsäuren etwa 8 bis 18 C-Atomen in der Alkylgruppe. Besonders bevorzugte ampholytische Tenside sind das N-Cocosalkylaminopropionat, das Cocosacylaminoethylaminopropionat C12/18-Acylsarcosin. und das Neben den ampholytischen kommen auch quartäre Emulgatoren Betracht, wobei solche vom Typ der Esterquats, vorzugsweise

5

10

20

25

methylquaternierte Difettsäuretriethanolaminester-Salze, besonders bevorzugt sind.

Eine weitere Ausführungsform der erfindungsgemäßen Öl-in-Wasser-Emulsionen umfassen solche, die hydrophile Wachse ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Stearylalkohol, Stearinsäure und/oder Glycerylstearat als Konsistenzgeber sowie als Co-Emulgator einen organischen Emulgator enthalten, der in der Lage ist, zusammen mit hydrophilen Wachsen flüssig-kristalline Strukturen aufzubauen. Bevorzugt ist ein Anteil von 5 bis 49 Gew.-% des organischen Co-Emulgators an der Gesamtmenge der Emulgatoren, besonders bevorzugt ein Anteil von 10 bis 35 Gew.-%. Der Anteil des erfindungsgemäß verwendeten Polyethersiloxans beträgt mindestens 51 Gew.-% an Gesamtmenge der Emulgatoren.

Als Konsistenzgeber kommen in erster Linie Fettalkohole oder Hydroxyfettalkholole mit 12 bis 22 und vorzugsweise 16 Kohlenstoffatomen und daneben Partialglyceride, Fettsäuren oder Hydroxyfettsäuren in Betracht. Geeignete Verdickungsmittel sind beispielsweise Polysaccharide. insbesondere Xanthan-Gum, Guar-Guar, Agar-Agar, Alginate und Tylosen, Carboxymethyl-cellulose und Hydroxyethylcellulose, ferner höhermolekulare Polyethylenglycolmonound diester von Fettsäuren, Polyacrylate (beispielsweise Carbopole von Goodrich, TEGO Carbomere von Goldschmidt oder Synthalene von Sigma), Polyacrylamide, Polyvinylalkohol und Polyvinylpyrrolidon, Tenside wie beispielsweise ethoxy-Fettsäureglyceride, Ester Fettsäuren von Polyolen wie beispielsweise Pentaerythrit oder Trimethylolpropan, Fettalkoholethoxylate mit eingeengter Homologenverteilung oder Alkyloligoglucoside.

10

15

20

Als Ölphase kommen beispielsweise solche Ölkomponenten in die als kosmetische und pharmazeutische ponenten sowie als Gleit- und Schmiermittelkomponenten bekannt sind. Hierzu zählen insbesondere Mono- oder Diester von linearen und/oder verzweigten Mono- und/oder Dicarbonsäuren mit 44 C-Atomen mit 2 bis linearen und/oder verzweigten gesättigten oder ungesättigten Alkoholen mit 1 bis 22 C-Atomen. Ebenso sind im erfindungsgemäßen Sinne die Veresterungsprodukte aliphatischer, difunktioneller Alkohole mit C-Atomen mit bis 36 monofunktionelllen aliphatischen Carbonsäuren mit 1 bis 22 C-Atomen geeignet. Als Ölkomponenten geeignete Monoester sind beispielsweise die Methylester und Isopropylester von Fettsäuren mit 12 bis 22 C-Atomen wie beispielsweise Methyllaurat, Methylstearat, Methyloleat, Methylerucat, Isopropyl-Isopropylmyristat, Isopropylstearat, Isopropylpalmitat, oleat Frage. Andere geeignete Monoester beispielsweise n-Butylstearat, n-Hexyllaurat, n-Decyloleat, Isooctylstearat, Isononylpalmitat, Isononylisononanoat, 2-Ethylhexylpalmitat, 2-Ethylhexyllaurat, 2-Hexyldecylstearat, 2-Octyldodecylpalmitat, Oleyloleat, Oleylerucat, Erucyloleat sowie Ester, die aus technischen aliphatischen Alkoholschnitten und technischen, aliphatischen Carbonsäuregemischen erhältlich sind, beispielsweise Ester aus ungesättigten Fettalkoholen mit 12 bis 22 C-Atomen und gesättigten und ungesättigten Fettsäuren mit 12 bis 22 C-Atomen wie sie aus tierischen und pflanzlichen Fetten zugänglich sind. Geeignet sind aber auch natürlich vorkommende Monoester- bzw. Wachsester-Gemische wie sie beispielsweise im Jojobaöl oder im Spermöl vorliegen.

Geeignete Dicarbonsäureester sind beispielsweise Di-n-butyl-adipat, Di-n-butyl-sebacat, Di-(2-ethylhexyl)-adipat, Di-(2-hexyldecyl)-succinat, D-isotridecylacelaat. Geeignete

10

15

20

25

. 30

Diolester sind beispielsweise Ethylenglycoldioleat, Ethylenglycol-di-isotridecanoat, Propylenglycol-di-(2-ethylhexanoat), Butandiol-di-isostearat und Neopentylglycol-dicaprylat.

5

10

Ebenso als Ölkomponente geeignet sind die säuretriglyceride, wobei unter diesen die natürlich vorkommenden Öle und Fette bevorzugt sind. So beispielsweise natürliche, pflanzliche Öle, beispielsweise Olivenöl, Sonnenblumenöl, Sojaöl, Erdnußöl, Mandelöl, Palmöl aber auch die flüssigen Anteil Kokosöls oder des Palmkernöls sowie tierische Öle wie beispielsweise Klauenöl, die flüssigen Anteile des Rindertalgs oder auch synthetische Triglyceride von Capryl-Caprinsäure-Gemischen, Triglyceride aus technischer Ölsäure oder aus Palmitinsäure-Ölsäure-Gemischen als Ölkomponenten in Frage.

Als weitere Hilfs- und Zusatzstoffe kommen unter anderem 20 UV-Lichtschutzfilter in Frage.

Unter UV-Lichtschutzfiltern sind organische Substanzen zu verstehen, die in der Lage sind, ultraviolette Strahlen zu absorbieren und die aufgenommene Energie in Form 25 längerwelliger Strahlung, beispielsweise Wärme wieder abzugeben. UVB-Filter können öllöslich oder wasserlöslich sein. Als öllösliche Substanzen sind beispielsweise zu nennen:

- 30 3-Benzylidencampher und dessen Derivate, beispielsweise 3-(4-Methylbenzyliden)camphor
  - 4-Aminobenzoesäurederivate, vorzugsweise 4-(Dimethylamino)benzoesäure-2-ethylhexylester, 4-(Dimethylamino)ben-

zoesäure-2-ethylhexylester und 4-(Dimethylamino)benzoesäureamylester

- Ester der Zimtsäure, vorzugsweise 4-Methoxyzimtsäure-2-5 ethylhexylester, 4-Methoxyzimtsäureisopentylester, 2-Cyan-3-phenyl-zimtsäure-2-ethylhexylester (Octocrylene)
  - Ester der Salicylsäure, vorzugsweise Salicylsäure-2ethylhexylester, Salicylsäure-4-isopropylbenzylester, Salicylsäurehomomenthylester
  - Derivate des Benzophenons, vorzugsweise 2-Hydroxy-4-methoxybenzophenon, 2-Hydroxy-4-methoxy-4'-methylbenzophenon, 2,2'-Dihydroxy-4-methoxybenzophenon
  - Ester der Benzalmalonsäure, vorzugsweise 4-Methoxybenzmalonsäuredi-2-ethylhexyester
- Triazinderivate, wie beispielsweise 2,4,6-Trianilino-(p20 carbo-2'-ethyl-1'-hexyloxy)-1,3,5-triazin und Octyltriazon.
  - Propan-1,3-dione, wie beispielsweise 1-(4-tert.Butyl-phenyl)-3-(4'methoxyphenyl)propan-1,3-dion.

Als wasserlösliche Substanzen kommen in Frage:

- 2-Phenylbenzimidazol-5-sulfonsäure und deren Alkali-,
  Erdalkali-, Ammonium-, Alkylammonium-, Alkanolammoniumund Glucammoniumsalze
  - Sulfonsäurederivate von Benzophenon, vorzugsweise 2-Hydroxy-4-methoxybenzophenon-5-sulfonsäure und ihre Salze

18. Februar 2000

10

15

25

angles and the

- Sulfonsäurederivate des 3-Benzylidencamphers, wie beispielsweise 4-(2-Oxo-3-bornylidenmethyl)benzolsulfonsäure und 2-Methyl-5-(2-oxo-3-bornyliden)sulfonsäure und deren Salze.

Als typische UV-A-Filter kommen insbesondere Derivate des Benzoylmethans in Frage, wie beispielsweise 1-(4'tert.-Butylphenyl) -3-(4'-methoxyphenyl) propan-1,3-dion Phenyl-3-(4'-isopropylphenyl)propan-1,3-dion. Die UV-A- und UV-B-Filter können selbstverständlich auch in Mischungen eingesetzt werden. Neben den genannten löslichen Stoffen kommen für diesen Zweck auch unlösliche Pigmente, nämlich feindisperse Metalloxide beziehungsweise Salze in Frage, wie beispielsweise Titandioxid, Zinkoxid, Eisenoxid, Aluminiumoixid, Ceroxid, Zirkoniumoxid, Silicate Bariumsulfat und Zinkstearat. Die Partikel sollten dabei einen mittleren Durchmesser von weniger als 100 vorzugsweise zwischen 5 und 50 nm und insbesondere zwischen 15 und 30 nm aufweisen. Sie können eine sphärische Form aufweisen, es können jedoch auch solche Partikel Einsatz kommen, die eine ellipsoide oder in sonstiger Weise von der sphärischen Gestalt abweichende Form besitzen. Eine relativ neue Klasse von Lichtschutzfiltern sind micronisierte organische Pigmente, wie beispielsweise 2,2'-Methylene-bis- $\{6-(2H-benzotriazol-2-yl)-4-(1,1,3,3-tetra$ methylbutyl)-phenol} mit einer Partikelgröße von kleiner 200 nm, das beispielsweise als 50%ige wäßrige Dispersion erhältlich ist.

Neben den beiden vorgenannten Gruppen primärer Lichtschutzstoffe können auch sekundäre Lichtschutzmittel vom Typ der Antioxidantien eingesetzt werden, die die photochemische Reaktionskette unterbrechen, welche

5

10

15

20

ausgelöst wird, wenn UV-Strahlung in die Haut eindringt. Typische Beispiele hierfür sind Aminosäure (beispielsweise Glycin, Histidin, Tyrosin, Tryptophan) und deren Derivate, Imidazole (beispielsweise Urocaninsäure) und Derivate, Peptide wie D,L-Carnosin, D-Carnosin und deren Derivate (beispielsweise Anserin), Carotinoide, Carotine (beispielsweise  $\alpha\text{-Carotin}$ ,  $\beta\text{-Carotin}$ , Lycopin) und deren Derivate, Chlorogensäure und deren Derivate, Liponsäure und deren Derivate (beispielsweise Dihydroliponsäure), Aurothioglucose, 10 Propylthiouracil und andere Thiole (beispielsweise Thioredoxin, Glutathion, Cystein, Cystin, Cystamin und deren Glycosyl-, N-Acetyl-, Methy-, Ethyl-, Propyl-, Amyl-, Butyl- und Lauryl-, Palmitoyl-, Oleyl-,  $\gamma$ -Linoleyl, Cholesteryl- und Glycerylester) sowie deren 15 Dilaurylthiopropionat, Distearylthiopropionat, Thiodipropionsäure und deren Derivate (Ester, Ether, Peptide, Lipide, Nukleotide, Nukleoside und Salze) sowie Sulfoximinverbindungen (beispielsweise Buthioninsulfoximine. Homocysteinsulfoximin, Butioninsulfone, Penta-, 20 Hexa-, Heptathioninsulfoximin) in sehr geringen verträglichen Dosierungen (beispielsweise pmol mol/kq), ferner (Metall)-Chelatoren (beispielsweise Hydroxyfettsäuren, Palmitinsäure, Phytinsäure, α-Hydroxysäuren (beispielsweise Citronensäure, ferrin), Milchsäure, Äpfelsäure), Huminsäure, Gallensäure, Gallen-25 extrakte, Bilirubin, Biliverdin, EDTA, EGTA und deren Derivate, Ubichinon und Ubichinol und deren Derivate, Vitamin C und Derivate (z.B. Ascorbylpalmitat, Mg-Ascorbylphosphat, Ascorbylacetat), Tocopherole und Derivate (beispielsweise Vitamin-E-acetat), Vitamin A und Derivate 30 (Vitamin-A-palmitat) sowie Koniferylbenzoat des Benzoeharzes, Rutinsäure und deren Derivate,  $\alpha$ -Glycosylrutin, Fetulasäure, Furturylidenglucitol, Carnosin, droxytoluol, Butylhydroxyanisol, Nordihydroguajakharzsäure,

Nordihadroguajaretsäure, Trihydroxybutyrophenon, Harnsäure und deren Derivate, Mannose und deren Derivate, Superoxid-Dismutase, Zink und dessen Derivate (beispielsweise ZnO, ZnSO4), Selen und dessen Derivate (beispielsweise Selenmethionin), Stilbene und deren Derivate (beispielsweise Stilbenoxid, trans-Stilbenoxid) und die erfindungsgemäß geeigneten Derivate (Salze, Ester, Ether, Zucker, Nucleotide, Peptide und Lipide) dieser genannten Wirkstoffe.

10

5

Als Konservierungsmittel eigene sich beispielsweise Phenoxyethanol, Formaldehydlösung, Parabene, Pentandiol oder Sorbinsäure.

15

20

30

Insekten-Repellentien kommen N, N-Diethyl-m-toluamid, 1,2-Pentandiol oder Insect Repellent 3535 in Frage, als Selbstbräuner eignet sich Dihydroxyaceton, als Parfümöle seien genannt Gemische aus natürlichen und synthetischen Riechstoffen. Natürliche Riechstoffe sind Extrakte Blüten (Lilie, Lavendel, Rosen, Jasmin, Neroli, Ylang-Ylang), Stengeln und Blättern (Geranium, Patchouli, Petitgrain), Früchten (Anis, Koriander, Kümmel, Wacholder), Fruchtschalen (Bergamotte, Zitrone, Orangen), (Macis, Angelica, Sellerie, Kardamon, Costus, Iris, Thymian), Nadeln und Zweigen (Fichte, Tanne, Kiefer. Latschen), Harzen und Balsamen (Galbanum, Elemi, Benzoe, Myrrhe, Olibanum, Opoponax). Weiterhin kommen tierische Rohstoffe in Frage, wie beispielsweise Zibet und Castoreum. Typische synthetische Riechstoffverbindungen sind Produkte vom Typ der Ester, Ether, Aldehyde, Ketone, Alkohole und Kohlenwasserstoffe. Riechstoffverbindungen vom Typ Ester sind z.B. Benzylacetat, Phenoxyethylisobutyrat, ptert.-Butylcyclohexylacetat, Linalylacetat, Dimethylbenzyl-

carbinylacetat, Phenylethylacetat, Linalylbenzoat, Benzyl-Ethylmethyl-phenylglycinat, Allylcyclohexylpropionat, Styrallylpropionat und Benzylsalicylat. Zu den Ethern zählen beispielsweise Benzylethylether, zu Aldehyden beispielsweise die linearen Alkanale mit 8 bis 18 Kohlenstoffatomen, Citral, Citronellal, Citronellyloxyacetaldehyd, Cyclamenaldehyd, Hydroycitronellal, Lilial und Bourgeonal, zu den Ketonen beispielsweise die Jonone,  $\alpha$ -Isomethylionon und Methyl-cedrylketon, özu den Alkoholen 10 Anethol, Citronellol, Eugenol, Isoeugenol, Geraniol, Linalool, Phenylethylalkohol und Terpineol, zöu Kohlenwasserstoffen gehören hautpsächlich die Terpene und Balsame. Bevorzugt werden jedoch Mischungen verschiedener Riechstoffe verwendet, die gemeinsam eine ansprechende Duftnote erzeugen. Auch ätherische Öle geringer Flüchtigkeit, die meist als Aromakomponenten verwendet werden, eignen Parfümöle, beispielsweise sich als Salbeiöl, Kamillenöl, Nelkenöl, Melissenöl, Minzenöl, Zimtblätteröl, Lindenblütenöl, Wacholderbeerenöl, Vetiveröl, Olibanöl, Galbanumöl, Labolanumöl und Lavandinöl. Vorzugsweise werden Bergamotteöl, Dihydromyrcenol, Lilial, Lyral, Citronellol, Phenylethylalkohol,  $\alpha$ -Hexylzimtaldehyd, Geraniol, Benzylaceton, Cyclamenaldehyd, Linalool, Boisambrene Forte. Ambroxan, Indol, Hedione, Sandelice, Citronenöl, Mandarinenöl, Orangenöl, Allylamylglycolat, Cyclovertal, Lavandinöl, Muskateller Salbeiöl, β-Damascone, Geraniumöl Bourbon, Cyclohexylsalicylat, Vertofix Coeur, Iso-E-Super, Fixolide NP, Evernyl, Iraldein gamma, Phenylessigsäure, Geranylacetat, Benzylacetat, Rosenoxid, Romillat, und Floramat allein oder in Mischungen, eingesetzt.

Als Farbstoffe können die für kosmetische Zwecke geeigneten und zugelassenen Substanzen verwendet werden, beispielsweise in der Publikation "Kosmetische Färbemittel"

15

20

25

der Farbstoffkommission der Deutschen Forschungsgemeinschaft, Verlag Chemie, Weinheim, 1984, S. 81 - 106 zusammengestellt sind. Diese Farbstoffe werden üblicherweise in Konzentrationen von 0,001 bis 0,1 Gew.-%, bezogen auf die gesamte Mischung, eingesetzt.

Als Wirkstoffe sind beispielsweise Tocopherol, Tocopherolacetat, Tocopherolpalmitat, Ascorbinsäure, Desoxyribonucleinsäure, Retinol, Bisabolol, Allantoin, Phytantriol,
10 Panthenol, AHA-Säuren, Aminosäuren, Ceramide, Pseudoceramide, essentielle Öle, Pflanzenextrakte und Vitaminkomplexe geeignet.

Eine weitere Ausführung der erfindungsgemäßen Öl-in-Wasser15 Emulsionen umfassen solche, die frei sind von öllöslichen
Siliconverbindungen, insbesondere flüchtigen cylischen
Polydimethylsiloxanen.

Ausführungsbeispiele:

## Bezugsbeispiele 1 bis 5:

5

Beispiele erfindungsgemäß verwendeter Polyethersiloxane der allgemeinen Formel (I) sind in der folgenden Tabelle aufgeführt:

Beispiel	n	$MG_{Siliconrest}$	m	x	У	z	MGpolyetherreste	GewAnteil
					ļ			Polyether-
								reste in
		ļ.						[%] *
1	66	5048	3	13	0	1	1262	20
2	50	3837	3	15	10	15	2626	41
3	200	14952	3	13	20	1	3582	19
4	100	7542	3	11	17	1	3058	29
5	150	11247	3	19	3	29	2194	16

<sup>\*</sup>berechnet nach Formel (II)

Beispiele erfindungsgemäßer Öl-in-Wasser-Emulsionen sind im folgenden aufgeführt:

# Beispiel 1:

5

Α	Polyethersiloxan Bezugsbeispiel 5	10.00
		2,0 %
	Capryl/Caprin-Triglycerid	10,4 %
	Ethylhexyl-Stearat	5,0 %
	Mineral-Öl (30 mPas)	5,0 %
	Tocopheryl-Acetat	1,0 %
В	Glycerin	2,0 %
	Panthenol	1,0 %
	Allantoin	0,1 %
	Alkohol (Ethanol)	10,0 %
	Wasser	66,2 %
С	TEGO® Carbomer 140 (Carbomer)	0,15%
	TEGO® Carbomer 141 (Carbomer)	0,15 %
	Xanthan-Gum	0,1 %
	Ethylhexyl-Stearat	1,6 %
D	Natriumhydroxid (10 % in Wasser)	0,7 %
•	Konservierungsstoff, Parfum	q. s.

#### Beispiel 2:

A	Polyethersiloxan Bezugsbeispiel 4	2,3 %
	ABIL® B 88631)	0,3 %
	Capryl/Caprin-Triglycerid	10,4 %
	Isohexadecan	5,0 %
В	Wasser	79,3 %
С	TEGO® Carbomer 140 (Carbomer)	0,3.%
	Xanthan-Gum	0,1 %
	Mineral-Öl (30 mPas)	1,6 %
D	Natriumhydroxid (10 % in Wasser)	0,7 %
	Konservierungsstoff, Parfum	q. s.

<sup>1)</sup>ABIL® B 8863: Kammartiges Polyethersiloxan mit Gewichtsanteil der Polyetherreste an der Gesamtmolekularmasse von 76 %.

## 5 Beispiel 3:

А	Polyethersiloxan Bezugsbeispiel 1	2,0 %
	C12-15 Alkyl-Benzoat	3,0 %
	Decyl-Cocoat	2,0 %
	Isopropyl-Palmitat	0,4 %
	Avocado-Öl	1,0 %
	4-Methylbenzyliden-Campher	3,0 %
	Methoxyzimtsäure-ethylhexylester	2,5 %
	p-Methoxyzimtsäure-isoamylester	2,5 %
	Butyl-Methoxydibenzoylmethan	2,0 %
	Tocopheryl-Acetat	0,5 %
В	TEGO® SMO 80 (Polysorbate 80)	0,2 %
	Glycerin	2,0 %
	EDTA	0,1 %
	GluCare® S (Sodium Carboxymethyl	0,1 %
	Betaglucan)	
	Wasser	75,9 %
С	TEGO® Carbomer 140 (Carbomer)	0,15%
_	TEGO® Carbomer 141 (Carbomer)	0,15 %
	Xanthan-Gum	0,1 %
	Isopropyl-Palmitat	1,6 %
D	Natriumhydroxid (10 % in Wasser)	0,8 %
	Konservierungsstoff, Parfum	q. s.

## Beispiel 4:

A	Polyethersiloxan Bezugsbeispiel 2	2,0 %
	C12-15 Alkyl-Benzoat	3,0 %
	Decyl-Cocoat	2,0 %
	Isopropyl-Palmitat	0,4 %
	Avocado-Öl	1,0 %
	Methoxyzimtsäure-ethylhexylester	5,0 %
	p-Methoxyzimtsäure-isoamylester	5,0 %
	Tocopheryl-Acetat	0,5 %
В	TEGO® SMO 80 (Polysorbate 80)	0,2 %
	Glycerin	2,0 %
	GluCare® S (Beta-Glucan)	0,1 %
	Wasser	68,6 %
С	TEGO® Carbomer 140 (Carbomer)	0,15%
	TEGO® Carbomer 141 (Carbomer)	0,15 %
	Xanthan-Gum	0,1 %
	Isopropyl Palmitat	1,6 %
D	Tinosorb® M (Methylen-bis-benzotriazolyl-	8,0 %
	tetramethylbutylphenol) (50 %)	
Е	Natriumhydroxid (10 % in Wasser)	0,8 %
	Konservierungsstoff, Parfum	q. s.
	*	

## Beispiel 5:

A	Polyethersiloxan Bezugsbeispiel 3	1,5 %
	TEGINACID® C (Ceteareth-25)	0,5 %
	Stearyl-Alkohol	2,0 %
	Glyceryl-Stearat	1,0 %
	Stearinsäure	1,0 %
	Isopropyl-Palmitat	5,0 %
	Ethylhexyl-Stearat	5,0 %
	Mineral-Öl (30 mPas)	3,2 %
	Tocopheryl-Acetat	0,3 %
В	Glycerin	2,0 %
	Panthenol	0,5 %
	Allantoin	0,2 %
	Wasser	76,96 %
C	TEGO® Carbomer 134 (Carbomer)	0,1 %
	Mineral-Öl (30 mPas)	0,4 %
D	Natriumhydroxid (10 % in Wasser)	0,25 %
	Konservierungsstoff, Parfum	q. s.

## Beispiel 6:

Polyethersiloxan Bezugsbeispiel 1	1,5 %
	1,5 %
PEG-100 Stearat	0,5 %
Stearyl-Alkohol	2,0 %
Stearinsäure	2,0 %
Capryl/Caprin-Triglycerid	7,0 %
Ethylhexyl-Stearat	6,2 %
Tocopheryl-Acetat	0,3 %
Glycerin	2,0 %
Panthenol	0,5 %
Allantoin	0,2 %
Wasser	76,96 %
TEGO® Carbomer 134 (Carbomer)	0,1 %
Mineral-Öl (30 mPas)	0,4 %
Natriumhydroxid (10 % in Wasser)	0,25 %
Konservierungsstoff, Parfum	q. s.
	Stearinsäure  Capryl/Caprin-Triglycerid  Ethylhexyl-Stearat  Tocopheryl-Acetat  Glycerin  Panthenol  Allantoin  Wasser  TEGO® Carbomer 134 (Carbomer)  Mineral-Öl (30 mPas)  Natriumhydroxid (10 % in Wasser)

### Beispiel 7:

A	Polyethersiloxan Bezugsbeispiel 4	1,5 %
	TEGINACID® C (Ceteareth-25)	0,5 %
	Stearyl-Alkohol	1,5 %
	Glyceryl-Stearat	2,5 %
	Stearyl-Heptanoat	3,0 %
	Cetearyl-Ethylhexanoat	7,0 %
	Decyl-Oleat	3,5 %
В	Glycerin	3,0 %
	Panthenol	0,5 %
	Wasser	76,16 %
С	TEGO® Carbomer 134 (Carbomer)	0,1 %
	Mineral-Öl (30 mPas)	0,4 %
D	Natriumhydroxid (10 % in Wasser)	0,25 %
	Konservierungsstoff, Parfum	q. s.

5

#### Beispiel 8, Vergleichsbeispiele 1 und 2:

	Beispiele	Vgl.1	Vgl.2	8
A	Polyethersiloxan	_	_	1,8 %
	Bezugsbeispiel 3			
	ABIL® B 88631)	1,8 %	1,8 %	-
	Ceteareth-25®	-	0,2 %	0,2 %
	Glyceryl-Stearat	2,0 %	2,0 %	2,0 %
	Stearyl-Alkohol	1,0 %	1,0 %	1,0 %
	Mineral-Öl	5,0 %	5,0 %	5,0 %
	Octyl-Stearat	5,0 %	5,0 %.	5,0 %
	Isopropyl-Palmitat	5,0 %	5,0 %	5,0 %
В	Glycerin	2,0 %	2,0 %	2,0 %
	Wasser	80,0 %	80,0 %	80,0 %

<sup>1)</sup>ABIL® B 8863: Kammartiges Polyethersiloxan mit Gewichts-anteil der Polyetherreste an der Gesamtmolekularmasse von 76 %.

Herstellung: Phase A und Phase B wurden separat auf 70 °C erhitzt, vereinigt und die Mischung 1 min lang intensiv homogenisiert. Anschließend kühlte man im Wasserbad unter Rühren ab. Die Emulsion des Vergleichsbeispiels 1 blieb nach Abkühlen wasserdünn und die Konsistenzgeber lagen als 10 inhomogene Klumpen vor. Die Emulsion des Vergleichsbeispiels 2 wurde zwar cremeartig fest, Emulsion war jedoch stark inhomogen und griessig, während erfindungsgemäße Emulsion gemäß Beispiel Abkühlen auf Raumtemperatur ein glattes und homogenes 15 Aussehen hatte.

Dieser Vergleich verdeutlicht, daß sich Cremes mit dem erfindungsgemäß eingesetzten Polyethersiloxan Bezugsbeispiel 3 in Kombination mit dem organischen Co-Emulgator Ceteareth-25 einwandfrei nach dem Heißverfahren herstellen lassen. während sich Cremes mit Kombination des Polyethersiloxans ABIL® В 8863 mit Ceteareth-25 nicht herstellen lassen.

25

20

Beispiel 9, Vergleichsbeispiele 3 und 4:

	Tp.:/:	T	<del></del>	
l	Beispiele	9	Vgl.3	Vgl. 4
Α	Polyethersiloxan	1,0 %		
	Bezugsbeispiel 3			
	Hostaphat® KL 340 N (Trilaureth-	-	1,0 %	
	4 Phosphat)			
	ABIL® B 88521)			1,0 %
	MineralÖl	8,0 %	8,0 %	8,0 %
	Octyl-Palmitat	5,0 %	5,0 %	5,0 %
	Capryl/Capri-Triglycerid	6,0 %	6,0 %	6,0 %
В	Glycerin	2,8 %	2,8 %	2,8 %
	Wasser	75,0 %	75,0 %	75,0 %
С	Natriumhydroxid (10 % in Wasser)	0,7 %	0,7 %	0,7 %
D	TEGO® Carbomer 140 (Carbomer)	0,2 %	0,2 %	0,2 %
	Xanthan-Gum	0,2 %	0,2 %	0,2 %
	Octyl-Palmitat	1,1 %	1,1 %	1,1 %

5 1) ABIL® B 8852: Kammartiges Polyethersiloxan mit Gewichtsanteil der Polyetherreste an der Gesamtmolekularmasse von 67 %.

Herstellung: Phase A wurde gemischt, bis sie homogen war / 10 und dann zu Phase В gegeben. Es wurde intensiv homogenisiert. Anschließend gab man Phase C unter leichtem Rühren Schließlich zu. qab man Phase zu und homogenisierte nochmals kurz.

Die Rezeptur gemäß Beispiel 1 ergab nach Herstellung eine glatte, homogene Emulsion mit einer Viskosität von 9,0 Pas, Rezeptur gemäß Vergleichsbeispiel 3 eine glatte, homogene Emulsion mit einer Viskosität von 4,5 Pas. Rezeptur gemäß Vergleichsbeispiel 4 ergab nach Zugabe der Carbomer/Xanthan

Gum-Dispersion eine glasige und inhomogene Emulsion, die bereits nach einigen Minuten separierte.

Dieser Vergleich verdeutlicht, daß die verdickende und stabilisierende Wirkung von Hydrocolloiden wie Carbomeren oder Xanthan Gum von Emulgatoren in unterschiedlicher Weise beeinflußt wird. Von den erfindungsgemäß verwendeten Siliconpolyethern werden sie praktisch nicht in Wirkung beeinträchtigt; ihre verdickende Wirkung wird durch einen handelsüblichen organischen Emulgator geschwächt, von dem handelsüblichen kammartigen Siliconpolyether ABIL® B 8852 wird dagegen sogar die stabilisierende Wirkung aufgehoben.

#### 15 Beispiel 10:

5

10

20

25

30

In einem Panel-Test wurden 20 Personen gebeten, zwei Körperlotionen bezüglich der Applikationseigenschaften miteinander zu vergleichen. Eine Lotion enthielt 2 % des Polyethersiloxan gemäß Bezugsbeispiel 3 als Emulgator, die andere Lotion einen marktüblichen organischen Emulgator, Eumulgin® VL 75 (Compound aus Lauryl Glucosid, Polyglycerin-2 Dipolyhydroxystearat, Glycerin und Wasser, 4 % entsprechend 2 % emulgieraktive Komponenten); ansonsten waren die Rezepturen identisch.

Ergebnis: Bezüglich der Verteilbarkeit und dem Einziehverhalten wurden die beiden Lotionen praktisch gleich bewertet, das Hautgefühl nach dem vollständigen Einziehen der Lotionen wurde im Fall des Polyethersiloxans jedoch als glatter/weicher und samtiger/seidiger bewertet als im Fall des organischen Emulgators. 17 von 20 Personen würden die Lotion mit dem Polyethersiloxan bevorzugen.

#### Beispiel 11:

10

15

20

In einem Panel-Test wurden 5 Personen gebeten, zwei Körperlotionen bezüglich der Applikationseigenschaften miteinander zu vergleichen. Eine Lotion enthielt 3 % des Polyethersiloxan gemäß Bezugsbeispiel 5 als Emulgator, die andere Lotion einen marktübliches Polyethersiloxan, ABIL B 8843 (kammartiges Polyethersiloxan mit Gewichtsanteil der Polyetherreste an der Gesamtmolekularmasse von 67 %); ansonsten waren die Rezepturen identisch.

Ergebnis: Bezüglich der Verteilbarkeit und dem Einziehverhalten wurden die beiden Lotionen praktisch gleich bewertet, das Hautgefühl nach dem vollständigen Einziehen der Lotionen wurde im Fall des erfindungsgemäßen Polyethersiloxans jedoch als glatt/weich und samtig/seidig bewertet, während das Hautgefühl im Fall des marktüblichen Polyethersiloxans als trocken und stumpf bewertet wurde. Personen bevorzugten die Lotion mit dem erfindungsgemäßen Polyethersiloxan.

Patentansprüche

 Kosmetische oder pharmazeutische Öl-in-Wasser Emulsionen, die ein oder mehrere Polyethersiloxane der allgemeinen Formel (I)

$$R(CH_3)_2SiO^{-}[(CH_3)_2SiO]_n^{-}Si(CH_3)_2R$$
 (I)

10 wobei

n = 50 bis 250

 $R = -(CH_2)_{m}-O-(C_2H_4O)_{x}-(C_3H_6O)_{y}R^1$ 

m = 2 bis 4

x = 3 bis 100

15 y = 0 bis 50

 $R^1 = H$ ,  $CH_3$ , oder  $CH_2CH_3$ 

ist,

mit einem Gewichtsanteil der Polyetherreste R von bis zu 45 20 Gew. % an der Gesamtmolekularmasse, berechnet nach Formel (II)

"Gewichtsanteil (in %) der Polyetherreste R an der Gesamtmolekularmasse" =  $(MG_{Polyetherreste}/MG_{Gesamt}) \bullet 100$  (II)

25

mit

MG<sub>Gesamt</sub> = MG<sub>Siliconrest</sub> + MG<sub>Polyetherreste</sub>

 $MG_{Siliconrest} = n \cdot 74,1 + 132,2$ 

30  $MG_{Polyetherreste} = 2 \cdot (m \cdot 14 + 16 + x \cdot 44 + y \cdot 58 + z)$  mit z = 1, 15 oder 29 enthalten.

- 2. Kosmetische oder pharmazeutische Öl-in-Wasser-Emulsion nach Anspruch 1, enthaltend
- (a) ein oder mehrere Polyethersiloxane der allgemeinen Formel (I)
  - (b) gegebenfalls einen oder mehrere Co-Emulgatoren.
  - (c) flüssig-kristalline Strukturen ausbildende hydrophile Wachse und/oder wasserquellbare Organopolymere als Konsistenzgeber und Stabilisatoren,
- 10 (d) kosmetische Öle und Wachse und

5

- (e) übliche Hilfs- und Wirkstoffe.
- 3. Kosmetische oder pharmazeutische Öl-in-Wasser-Emulsionen nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, 15 diese polare Wachse ausqewählt aus der Gruppe, aus Stearylalkohol, Stearinsäure Glycerylstearat als Konsistenzgeber und einen Co-Emulgator enthalten.
  - 4. Kosmetische oder pharmazeutische Öl-in-WasserEmulsionen nach Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet,
    daß der Anteil des Polyethersiloxans der allgemeinen Formel
    (I) im Fall der Anwesenheit von Co-Emulgatoren, bezogen auf
    die Gesamtmenge der Emulgatoren wenigstens 50 Gew. %,
    insbesondere 65 bis 90 Gew. % beträgt.
    - 5. Kosmetische oder pharmazeutische Öl-in Wasser-Emulsionen nach einem der Ansprüche 2 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Anteil des Co-Emulgators an der Gesamtmenge der Emulgatoren 5 bis 49 Gew.-% insbesondere 10 bis 35 Gew.-% beträgt.
    - 6. Kosmetische oder pharmazeutische Öl-in-Wasser-Emulsionen nach einem der vorhergehenden Ansprüche dadurch

gekennzeichnet, dass die weiteren Hilfs- und Zusatzstoffe ausgewählt sind aus der Gruppe bestehend aus UV-Lichtschutzfiltern, Antioxidantien, Konservierungsmittel, Insekten-Repellentien, Selbstbräunern, Parfumölen, Farbstoffen und Wirkstoffen.

- 7. Kosmetische oder pharmazeutische Öl-in-Wasser-Emulsionen nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß sie frei von siliconartigen Ölkomponenten sind.
- 8. Kosmetische oder pharmazeutische Öl-in-Wasser-Emulsionen nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß diese frei von kettenförmigen oder 15 flüchtigen cylischen Polydimethylsiloxanen sind.



# Zusammenfassung:

5

Kosmetische und pharmazeutische Öl-in-Wasser-Emulsionen

Die Erfindung betrifft die Verwendung von polyethermodifizierten Polysiloxanen definierter Struktur zur

10 Herstellung kosmetischer und pharmazeutischer Öl-in-WasserEmulsionen sowie Öl-in-Wasser-Emulsionen, die diese
enthalten.